

---

**МИНИСТЕРСТВО ОБРАЗОВАНИЯ И НАУКИ РОССИЙСКОЙ ФЕДЕРАЦИИ**  
**ФЕДЕРАЛЬНОЕ АГЕНТСТВО ПО ОБРАЗОВАНИЮ**

---

**ГОУ ВПО “Уральский государственный университет им. А.М. Горького”**

УДК 537.226.4

Код ГРНТИ 29.19.35

УТВЕРЖДАЮ

Проректор по инновационной деятельности

Кружаев В.В.

\_\_\_\_\_ “ 15 ” октября 2007 г.

М.П.

**ОТЧЕТ**  
**О НАУЧНО-ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКОЙ РАБОТЕ**

Разработка методов изготовления периодических нано-доменных структур с  
субмикронными периодами в монокристаллах ниобата лития с использованием  
импульсного лазерного облучения  
(итоговый)

Этап №2 «Исследование формирования доменной структуры в результате  
неоднородного импульсного облучения лазером»

2007-3-1.3-25-01-183

Государственный контракт от 21 марта 2007 г. № 02.513.11.3128  
в рамках ФЦП «Исследования и разработки по приоритетным направлениям  
развития научно-технологического комплекса России на 2007-2012 годы»  
лот «Работы по проведению проблемно-ориентированных поисковых исследований  
и созданию научно-технического задела в области индустрии наносистем и  
материалов по критической технологии «Технологии создания и обработки  
кристаллических материалов»»  
мероприятие 1.3

Руководитель проекта: \_\_\_\_\_ (д.ф.-м.н., профессор, В.Я. Шур)

г. Екатеринбург 2007 г.

## Список основных исполнителей

Научный руководитель, гл.н.с., д.ф.м.н., профессор	Шур В.Я. разделы 1,2,3,4,5,6,7
Исполнители:	
с.н.с., к.ф.-м.н.	Пелегов Д.В., разделы 1,4
с.н.с., к.ф.-м.н.	Шишкин Е.И., разделы 3,7
с.н.с., к.ф.-м.н.	Батурин И.С., раздел 3,6,7
н.с., к.ф.-м.н.	Негашев С.А., разделы 2,3,5
н.с., к.ф.-м.н.	Кузнецов Д.К., разделы 2,3,4,5,6,7
н.с., к.ф.-м.н.	Якутова О.В., раздел 3
н.с.	Шур А.Г., разделы 1,4,7
м.н.с.	Лобов А.И., разделы 4,7
м.н.с.	Пелегова Е.В., разделы 1,4
м.н.с.	Самарин П.В., раздел 3
м.н.с.	Долгошеина А.А., разделы 3
инженер	Небогатилов М.С., раздел 4
инженер	Грешняков Д.П., раздел 3
технолог	Бунина Л.В., раздел 3
стажер-иссл.	Зеленовский П.С., разделы 3,4
стажер-иссл.	Ахматханов А.Р., раздел 3,4
стажер-иссл.	Конев М.В., раздел 3
лаборант-иссл.	Долбилов М.А., раздел 3
лаборант-иссл.	Иевлев А.В., раздел 3
лаборант-иссл.	Мингалиев Е.А., раздел 3
лаборант-иссл.	Шихова В.А., раздел 3
лаборант-иссл.	Клементьев И.П., раздел 3
Соисполнители:	
зав. лаб., д.ф.-м.н., профессор	Осипов В.В., раздел 2
с.н.с., к.ф.-м.н.	Иванов М.Г., раздел 2
н.с.	Орлов А.Н., раздел 2
м.н.с.	Платонов В.В., раздел 2

## РЕФЕРАТ

Отчет 55 с., 1 ч., 36 рис., 1 прил.

НИОБАТ ЛИТИЯ, ПЕРЕКЛЮЧЕНИЕ ПОЛЯРИЗАЦИИ, СКАНИРУЮЩАЯ ЗОНДОВАЯ МИКРОСКОПИЯ, НАНО-ДОМЕННАЯ СТРУКТУРА, ЛАЗЕРНОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ.

Объектом проводимых исследований является процесс формирования периодической нано-доменной структуры в монокристаллах ниобата лития в результате импульсного воздействия интенсивного лазерного излучения. Цель работы – создание научных основ технологии изготовления нано-доменных структур с субмикронными периодами для управления нелинейно-оптическими свойствами и создания оптических элементов для преобразования частоты и коммутации когерентного излучения.

Разработаны и апробированы три варианта экспериментальных методик с использованием облучения ИК и УФ импульсным интенсивным лазерным излучением для создания периодических доменных структур в пластинах конгруэнтного LN и MgO:LN: (1) без приложения электрического поля, (2) с приложением поля в процессе облучения, и (3) с приложением поля после облучения. Экспериментально и методами компьютерного моделирования исследовано формирование нано-доменных структур в пьезоэлектрическом поле, возникающем в результате воздействия импульсного лазерного излучения. Для визуализации нано-доменов использованы методы сканирующей зондовой микроскопии.

Впервые показана возможность создания стабильных полосовых доменных структур с шириной доменов менее микрона и глубиной более 400 мкм. Впервые обнаружен и объяснен эффект блокирования роста доменов за пределы электрода, вызванный неоднородным нагревом пластины с поверхностными аппликациями. Методами компьютерного моделирования выявлены особенности пространственного распределения пьезоэлектрического поля после окончания лазерного импульса при охлаждении нагретой лазерным излучением зоны, что позволило объяснить основные закономерности формирования нано-доменных структур. Выявлена роль коррелированного зародышеобразования при формировании нано-доменных структур. Предложена достоверная модель для объяснения механизма переключения при воздействии локального нагрева, подтвержденная совпадением результатов расчета с экспериментом. Изготовлены экспериментальные образцы, представляющие собой пластины ниобата лития с периодической доменной структурой.

Полученные результаты позволили сформулировать новое направление доменной инженерии, связанное с использованием пространственно неоднородного импульсного нагрева сегнетоэлектриков для формирования прецизионных стабильных структур, состоящих из полосовых нано-доменов шириной 200-300 нм и глубиной, достигающей сотен микрон. Такие структуры могут быть использованы для создания волноводных и объемных устройств. Предложенная методика позволит также качественно улучшить технологию создания нелинейно-оптических элементов для генерации второй гармоники в диапазоне длин волн 400-600 нм на основе регулярных доменных структур с периодом 3-7 мкм.

Полученные результаты патентоспособны и представляют значительный интерес для развития нано-доменной инженерии и создания периодических микро- и нано-доменных структур в ниобате лития, что позволит реализовать новые возможности применения сегнетоэлектриков в фотонике.

Разработанная методика обладает рядом очевидных преимуществ по сравнению с известными методами создания периодических доменных структур с субмикронными периодами. Она является уникальной и исключительно перспективной для широкого круга применений, поскольку позволяет значительно упростить и удешевить процесс изготовления периодических структур.

Внедрение предложенной методики создания периодических доменных структур позволит улучшить параметры устройств для преобразования длины волны излучения при одновременном существенном уменьшении их стоимости, что открывает путь к массовому производству устройств на основе периодически поляризованного ниобата лития с прецизионной микро- и нано-доменной структурой.

Полученный конкурентоспособный продукт может быть широко внедрен на нескольких сегментах мирового рынка: (1) биомедицинские инструменты, (2) цифровое изображение и копирование, (3) хранение информации, (4) контроль полупроводников, (5) проекционное телевидение.

На основании полученных результатов с учетом проведенной оценки возможности создания конкурентоспособной технологии разработаны технические требования для ТЗ на НИОКР.

## СОДЕРЖАНИЕ

Введение .....	6
1. Обобщение результатов предыдущих этапов работ.....	7
2. Методика облучения пластин ниобата лития ИК лазерным излучением с последующим приложением электрического поля.....	12
3. Результаты экспериментов по исследованию зависимости доменной структуры при неоднородном облучении и воздействии электрического поля.....	13
3.1. Результаты экспериментов по исследованию влияния одновременного воздействия лазерного излучения и электрического поля на доменную структуру монокристаллов ниобата лития.....	20
3.2. Результаты экспериментов по исследованию влияния облучения лазерным излучением с использованием последующего приложения электрического поля на доменную структуру легированного MgO ниобата лития.....	21
3.3. Результаты экспериментов по исследованию влияния локального нагрева пропусканием тока через проводящие аппликации на доменную структуру легированного MgO ниобата лития .....	22
4. Сопоставление результатов эксперимента и моделирования.....	24
4.1. Влияние металлических аппликаций .....	24
4.2. Влияние неоднородного облучения .....	25
4.3. Облучение серий импульсов лазерного излучения .....	25
4.4. Рост нано-доменных цепей .....	26
5. Изготовление экспериментальных образцов.....	30
6. Описание возможности создания конкурентоспособной технологии и разработка рекомендаций по использованию результатов НИР.....	31
7. Технические требования для ТЗ на НИОКР.....	33
Заключение .....	36

## Введение

В последние годы, развивается доменная инженерия как новая ветвь науки и технологии, связанная с созданием стабильных доменных структур с заданными параметрами в коммерчески доступных сегнетоэлектрических кристаллах. Достижения доменной инженерии явились важным шагом в производстве электрооптических и нелинейно-оптических приборов и в расширении сферы их применения. В когерентных источниках света, изготовленных из нелинейно-оптических материалов с периодической доменной структурой, используется эффект квазифазового синхронизма для преобразования частоты излучения. Ниобат лития  $\text{LiNbO}_3$  (LN), обладающий большими электрооптическими и нелинейно-оптическими коэффициентами, является самым популярным объектом доменной инженерии, поскольку пластины LN большой площади сравнительно недороги. Легирование  $\text{MgO}$  повышает стойкость кристаллов LN к оптическому повреждению и позволяет создавать преобразователи большой мощности. Периодические доменные структуры создают приложением электрического поля при помощи создаваемой литографией электродной структуры. При этом чрезвычайно высокие коэрцитивные поля и разрастание доменов за пределы электродов ограничивают минимальный период, а также существенно увеличивают цену производимых элементов. В качестве метода создания регулярной структуры может быть использовано переключение поляризации в монокристаллической пластине LN за счет переключения в сильнонеравновесных условиях. В качестве возможного воздействия может быть использован нагрев поверхности пластины с помощью импульсного лазерного излучения. Переключение LN под действием пьезоэлектрического поля было продемонстрировано экспериментально, но кинетика этого процесса и формирование периодических структур ранее не исследовались.

Цель работы: создание научных основ технологии изготовления нано-доменных структур с субмикронными периодами для управления нелинейно-оптическими свойствами и создания оптических элементов для преобразования частоты и коммутации когерентного излучения.

Промежуточный отчет. Разработка методов изготовления периодических нано-доменных структур с субмикронными периодами в монокристаллах ниобата лития с использованием импульсного лазерного облучения: отчет о НИР (промежуточ.)/ГОУ ВПО Уральский государственный университет им. А.М. Горького (УрГУ); рук. В.Я. Шур. – Екатеринбург, 2007. –48 с. - № 02.513.11.3128.

## 1. Обобщение результатов предыдущих этапов работ

Проведенный анализ научно-технической литературы, нормативно-технической документации и других материалов, относящихся к теме исследования, позволил выявить общепринятые методы доменной инженерии, позволяющие создавать структуры с периодом в несколько микрон. При этом на одну из полярных поверхностей пластин ниобата лития  $\text{LiNbO}_3$  (LN) методами фотолитографии наносят периодические электроды и прикладывают электрические поля, превышающие пороговые значения. В настоящее время предпринимаются попытки поиска новых более гибких и дешевых методов создания периодических доменных структур. Продемонстрировано создание самоорганизованных квазипериодических нано-доменных структур в LN с помощью лазерного излучения, однако не удается получать прецизионные структуры со строго воспроизводимым периодом. Приведен обзор статей по вопросам влияния освещения на переключение поляризации в электрическом поле и формированию поверхностных доменных структур в монокристаллах LN и родственных кристаллах  $\text{LiTaO}_3$  (LT).

Для выполнения поставленной задачи была разработана методика облучения монокристаллических пластин конгруэнтного LN и  $\text{MgO:LN}$  интенсивным импульсным лазерным излучением с длинами волн, соответствующими сильному оптическому поглощению.

Для облучения пластин LN использовалось излучение в ультрафиолетовом (УФ) ( $\lambda = 266$  нм и  $308$  нм) и инфракрасном (ИК) диапазонах ( $\lambda = 10.6$  мкм).

В качестве источника ИК излучения использовался электроразрядный  $\text{CO}_2$  лазер, работающий в импульсно-периодическом режиме со средней мощностью  $1$  кВт, длительностью импульса около  $200$  мкс, и частотой следования импульсов от  $1$  до  $1200$  Гц.

Для генерации УФ излучения с длиной волны  $308$  нм использовался импульсно-периодический  $\text{XeCl}$  лазер со средней энергией излучения  $200$  мДж, длительностью импульса излучения  $25$  нс, и частотой следования импульсов  $250$  Гц.

УФ излучение с длиной волны  $266$  нм было получено в результате преобразования излучения  $\text{Nd:YAG}$  лазера (четвертая гармоника). Средняя энергия излучения  $9$  мДж, длительность импульса  $6$  нс, частота следования импульсов от  $1$  до  $20$  Гц.

При использовании каждого вида излучения подбиралась максимальная плотность энергии, при которой еще не происходило повреждения поверхности облучаемой пластины. Создание квазирегулярных доменных структур проводилось в результате

воздействия серии импульсов излучения с одновременным контролируемым перемещением пластины вдоль выделенного кристаллографического направления (сканированием).

Для изучения формирования нано-доменной структуры в результате воздействия импульса лазерного излучения проводилось **компьютерное моделирование кинетики доменной структуры в пирозлектрическом поле**, возникающем при охлаждении облученного участка пластины после окончания лазерного импульса. Была разработана оригинальная модель, с использованием которой производился расчет изменения пространственного распределения температуры при нагреве пластины импульсом лазерного излучения и последующем охлаждении после окончания импульса. Были рассчитаны зависимости от времени величины температуры и пирозлектрического поля ( $E_{\text{pir}}$ ) в центре и на краю облученной лазерным излучением зоны.

Для описания процесса формирования самоподобных нано-доменных структур при переключении поляризации в сильно неравновесных условиях было проведено компьютерное моделирование с использованием оригинальной двумерной кинетической вероятностной модели, учитывающей симметрию кристалла LN ( $C_{3v}$ ). Для анализа полученных самоподобных доменных структур использовался фрактальный формализм и статистический анализ.

При разработке **методики экспериментальных исследований параметров доменной структуры** использовалась статистическая обработка изображений доменной структуры, полученных методами оптической и сканирующей зондовой микроскопии (СЗМ).

Оптическое наблюдение доменной структуры проводилось в проходящем и отраженном свете с помощью поляризационной микроскопии, а также с применением метода фазового контраста. Для улучшения качества оптических изображений доменной структуры использовалось селективное химическое травление облученных пластин LN. Оптическое наблюдение рельефа травления проводилось в режимах светлого и темного поля в отраженном свете.

В качестве основного инструмента для визуализации нано-доменных структур использовался СЗМ Explorer, ThermoMicroscopes. СЗМ измерения проводились в двух основных режимах: атомно-силовой микроскопии (АСМ) и силовой микроскопии пьезоэлектрического отклика (PFM).



Проводилась статистическая обработка изображений доменной структуры для определения характерных параметров доменной структуры, индуцированной лазерным излучением. Фурье преобразование изображений позволило выявить как глобальные особенности, так и локальные характеристики доменных структур: ориентацию и размеры доменных лучей, а также средние расстояния между ними.

Были представлены **результаты экспериментов по исследованию зависимости доменной структуры от условий облучения**. Наличие оптического контраста, выявление доменной структуры на поперечных сечениях, а также результаты наблюдения с помощью PFM позволили однозначно утверждать, что индуцированные ультрафиолетовым (УФ) лазерным излучением поверхностные структуры являются сегнетоэлектрическими доменами. Анализ нано-доменных структур позволил выделить три типа наблюдаемых структур. «Изолированные домены» в виде точек и штрихов, формирующиеся при малых плотностях лазерного излучения и на краю облученной зоны. «Доменные лучи», растущие внутри облученной зоны. «Самоподобные структуры», образующиеся внутри облученной зоны при превышении порога плотности излучения.

Формирование нано-доменной структуры было разделено на три основных стадии: 1) образование изолированных нано-доменов (зародышей); 2) рост доменных лучей строго в выделенных кристаллографических направлениях; 3) ветвление вблизи существующих доменных лучей.

Наиболее типичной для облученной зоны является доменная структура, состоящая из ориентированных «доменных лучей». Рост большого количества лучей приводит к формированию сложных самоподобных структур, образованных в результате взаимодействия растущих лучей. Статистический анализ доменных структур позволил выделить зависимость количества ветвлений в кластере от плотности энергии лазерного излучения. Фрактальный анализ продемонстрировал самоподобность таких структур в широком диапазоне скейлинга с фрактальной размерностью равной 1.8.

Проведенные с помощью СЗМ детальные исследования структур, образующихся при воздействии лазерного излучения, показали, что рост доменных лучей, как правило, начинается с образования цепей, состоящих из изолированных нано-доменов, шириной от 30 нм. В процессе последующего переключения поляризации, индуцированного облучением, рост изолированных доменов, как правило, приводит к их слиянию и формированию доменных лучей.

Было показано, что облучение импульсами инфракрасного (ИК) лазерного излучения также приводит к формированию нано-доменных структур. Принципиальным отличием от облучения УФ излучением является то, что самоподобные доменные структуры образуются на обеих полярных поверхностях. Экспериментально было показано, что для получения нано-доменных структур необходимо воздействие ИК излучения с плотностью энергии более  $2.7 \text{ Дж/см}^2$ . СЗМ исследования полученных нано-доменных структур показали, что ширина нано-доменных лучей составляет  $320 \pm 60 \text{ нм}$ . Анализ Фурье преобразований изображений нано-доменных структур позволил провести количественную оценку изменений анизотропии роста лучей при увеличении плотности энергии лазерного излучения.

Изучение нано-доменных структур в пластинах нелегированного и легированного MgO ниобата лития (MgO:LN) позволило установить, что легирование не влияет на вид структуры, полученной при использовании УФ излучения. В то время как при использовании ИК излучения вид доменной структуры для легированных и нелегированных монокристаллов качественно различается, что было отнесено за счет увеличения проводимости при легировании.

Проводилось исследование возможности создания прецизионных нано-доменных структур с помощью импульсного ИК лазерного излучения высокой интенсивности в монокристаллах MgO:LN. Для этого на облучаемую поверхность пластин наносились регулярные металлические аппликации с заданным периодом и шириной. Облучение с низкой плотностью энергии приводило к формированию изолированных доменов под металлическими аппликациями. Увеличение плотности энергии приводило к образованию и росту доменных лучей под краями металлических полос в облученной зоне. После одиночного импульса суммарная площадь изолированных нано-доменов, значительно превышала суммарную площадь нано-доменных лучей. Увеличение количества импульсов облучения приводило к тому, что изолированные нано-домены разрастались и сливались, образуя нано-доменные лучи. Измерения, проведенные с помощью СЗМ, показали, что ширина нано-доменных лучей под краями металлических аппликаций, составляла  $350 \pm 50 \text{ нм}$ .

Было проведено **сопоставление результатов эксперимента и компьютерного моделирования**. Все рассчитанные особенности пространственного распределения

пироэлектрических полей были подтверждены детальными экспериментальными наблюдениями формирования нано-доменных структур.

Компьютерное моделирование показало, что быстрое охлаждение поверхностного слоя приводит к образованию сильных пироэлектрических полей вблизи края облученной зоны, что должно проявляться в повышении концентрации изолированных доменов. Проведенные экспериментальные измерения показали, что предсказанный эффект формирования нано-доменных структур при неоднородном облучении всегда выполняется.

При расчетах распределения пироэлектрического поля при облучении поверхности пластины LN с металлической аппликацией был обнаружен сильный краевой эффект. Наличие резкой границы области нагрева при облучении приводило к двум эффектам: (1) увеличению вероятности формирования изолированных нано-доменов вблизи края аппликации, и (2) блокированию разрастания нано-доменов за край аппликации. Оба предсказанных эффекта нашли экспериментальное подтверждение.

Компьютерное моделирование роста нано-доменных лучей с учетом их взаимодействия показало, что доменные структуры, полученные в рамках предложенной модели, учитывающей анизотропию роста и взаимодействие между доменами, качественно совпадают с нано-доменными структурами, полученными при лазерном облучении поверхности LN.

При выполнении работ по первому этапу был проведен патентный поиск по теме проекта.

Таким образом, были полностью решены все поставленные задачи первого этапа НИР. Полученные результаты оказались исключительно ценными, поскольку позволили продемонстрировать, что выбранное направление исследований является верным и его дальнейшее развитие приведет к созданию качественно новой технологии создания периодических нано-доменных структур в LN. Следует отметить, что развиваемая технология существенно превосходит все существующие современные научно-технические решения.

## **2. Методика облучения пластин ниобата лития ИК лазерным излучением с последующим приложением электрического поля**

### 3. Результаты экспериментов по исследованию зависимости доменной структуры при неоднородном облучении и воздействии электрического поля

На первом этапе работы было показано, что тип доменной структуры зависит от плотности энергии лазерного излучения. При низких значениях плотности энергии излучения в облученной зоне образуются только изолированные домены, в то время как при высокой плотности энергии формируется структура, состоящая из доменных лучей.

Детальные исследования результатов воздействия неоднородного облучения позволили выявить некоторые особенности формирования доменной структуры.

Было обнаружено, что параметры структуры, состоящей из изолированных доменов, зависят не только от средней плотности энергии лазерного излучения, но и от распределения интенсивности в облученной зоне, которое в центре существенно выше, чем на краях.

Статистический анализ параметров доменной структуры (Рис. 1а) показал, что среднее расстояние между изолированными доменами (Рис. 1б) и дисперсия функции распределения расстояний (Рис. 1в) увеличиваются по мере удаления от центра облученной зоны.

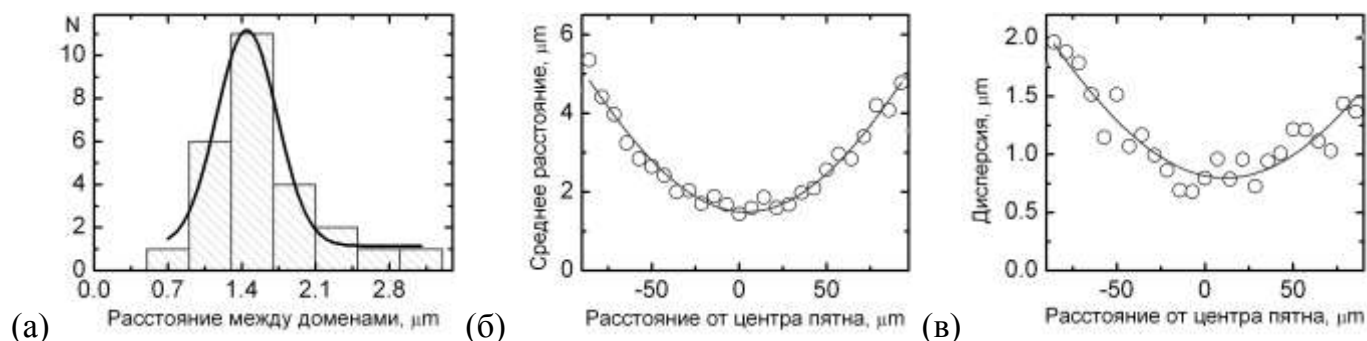


Рисунок 1. (а) Функция распределения расстояний между изолированными доменами; изменение (б) среднего расстояния и (в) дисперсии расстояния между изолированными доменами внутри облученной зоны. Аппроксимация функцией Гаусса.

Статистический анализ размеров изолированных доменов показал, что по мере удаления от центра облученной зоны средняя длина доменов увеличивается (Рис. 2).

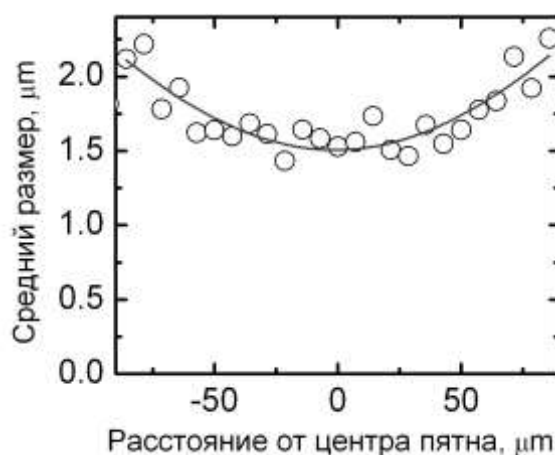


Рисунок 2. Зависимость среднего размера изолированных доменов от расстояния до центра облученной зоны. Аппроксимация функцией Гаусса.

Было обнаружено, что параметры доменной структуры существенно зависят от количества импульсов облучения. Анализ оптических изображений показал, что многократное облучение приводит к значительному увеличению площади, занимаемой изолированными доменами (суммарной переключенной площади под аппликацией) (Рис. 3).

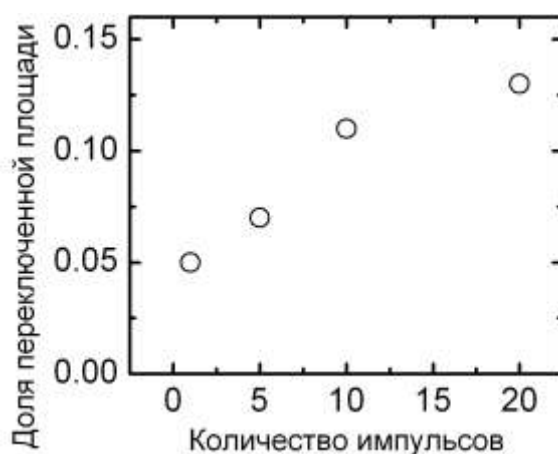


Рисунок 3. Зависимость доли переключенной площади от количества импульсов облучения.

Было установлено, что многократное облучение поверхности образца кроме образования изолированных доменов микронных размеров приводит к образованию цепей нано-доменов строго под краем металлических аппликаций. Исследования, проведенные с помощью сканирующей зондовой микроскопии, показали, что размер этих изолированных нано-доменов изменяется в диапазоне от 50 до 200 нм (Рис. 4) и зависит как от интенсивности лазерного излучения, так и от количества импульсов облучения. Наблюдаемое увеличение размеров при многократном облучении свидетельствует о

разрастании изолированных нано-доменов, образовавшихся после первого импульса облучения.

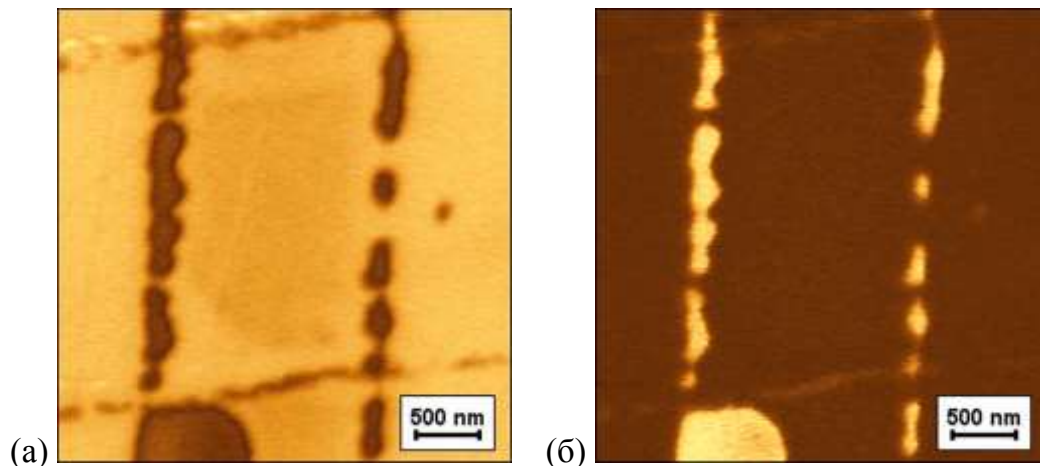


Рисунок 4. Образование изолированных нано-доменов под краем аппликации. Визуализация с помощью PFM: (а) амплитуда; (б) фаза.

Слияние изолированных нано-доменов (Рис. 5) в процессе роста приводит к появлению сплошных нано-доменных лучей, расположенных строго под краем металлических полос. Средняя ширина лучей составляет  $350 \pm 50$  нм. Образование цепей изолированных нано-доменов, а также нано-доменных лучей под краями аппликаций может быть отнесено за счет предсказанных с помощью компьютерного моделирования особенностей распределения пирозлектрических полей, возникающих при охлаждении пластины после завершения импульса лазерного излучения.

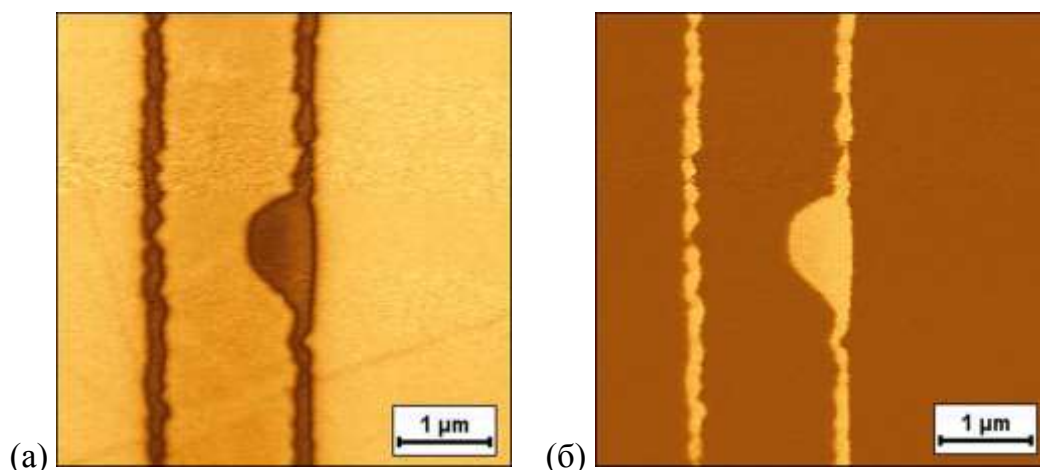


Рисунок 5. Слияние изолированных доменов под краем аппликации. Визуализация с помощью PFM: (а) амплитуда; (б) фаза.

Увеличение плотности энергии излучения приводит к образованию доменных лучей, рост которых происходит по правилам определенным для доменов, возникающих при однородном облучении. За счет роста доменных лучей в разрешенном направлении под

краем электрода формируются полосовые домены. При слишком высокой плотности энергии лазерного излучения доменные лучи распространяются и в противоположном направлении. Детальное рассмотрение полученной формы лучей показало, что в этом случае домены продолжают локально разрастаться только вдоль выделенных направлений, но с частой сменой локального направления роста, что приводит к формированию “зигзагообразных доменных лучей” (Рис. 6а). Потеря устойчивости роста, возникающая в сильно неравновесных условиях, созданных быстрым охлаждением, может приводить к образованию доменных лучей, формы которых представлены на Рисунках 6б и 6в.

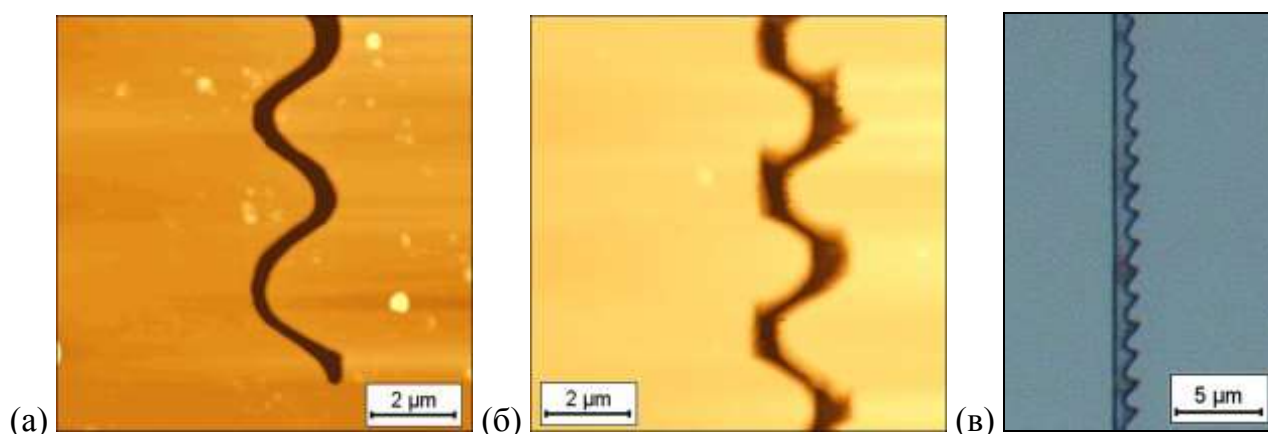


Рисунок 6. Форма доменов, образующихся при неоднородном облучении пластин ниобата лития лазерным излучением высокой интенсивности. Визуализация рельефа травления: (а), (б) сканирующая зондовая микроскопия; (в) оптическая микроскопия.

Особенность кинетики доменов при переключении в результате воздействия лазерного излучения заключается в том, что домены растут только под аппликацией. Следует отметить, что образование таких «экзотических» самоорганизованных форм доменных лучей является непригодным для рассматриваемых нами применений. Поэтому была предпринята попытка оптимизировать условия облучения для создания регулярных доменных структур.

Было показано, что при выборе оптимальной плотности энергии лазерного излучения образуются строго ориентированные доменные лучи (Рис. 7а), отстоящие друг от друга на расстояние превышающие период аппликации. Такое поведение доменных лучей может быть отнесено за счет электростатического домен-доменного взаимодействия. Последующее облучение такой области приводит к заполнению изолированными доменами промежутков между доменными лучами (Рис. 7б).



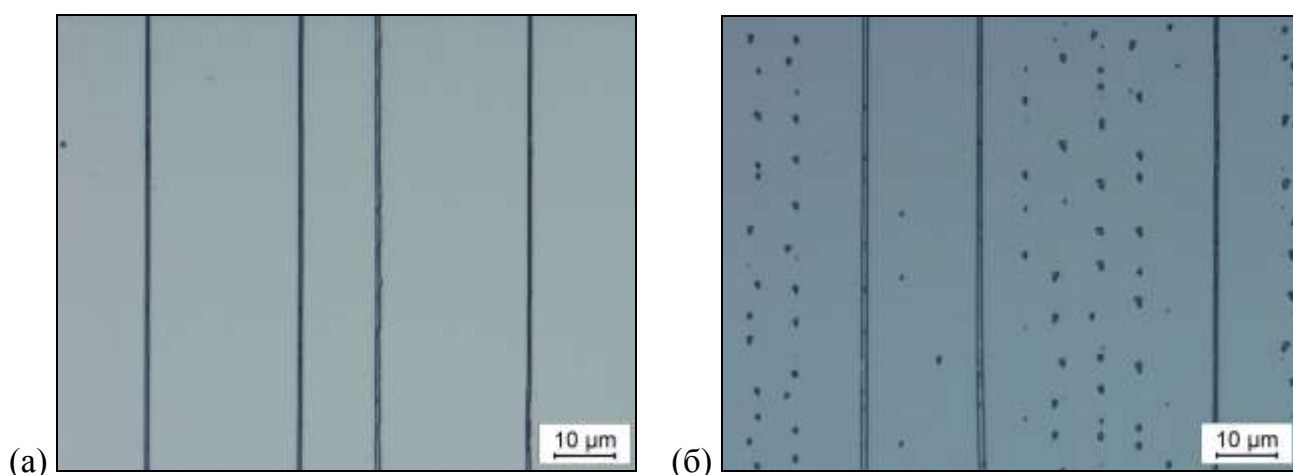


Рисунок 7. (а) Строго ориентированные доменные лучи и (б) изолированные домены после повторного облучения области. Оптическая визуализация рельефа травления.

Анализ оптических изображений боковых сечений пластин  $\text{MgO:LN}$  показал, что создаваемые домены имеют необычную форму «карандаша». Существующие  $180^\circ$  доменные стенки в основном вертикальны и нейтральны и только на конце домена имеется заострение с заряженными доменными стенками (Рис. 8).

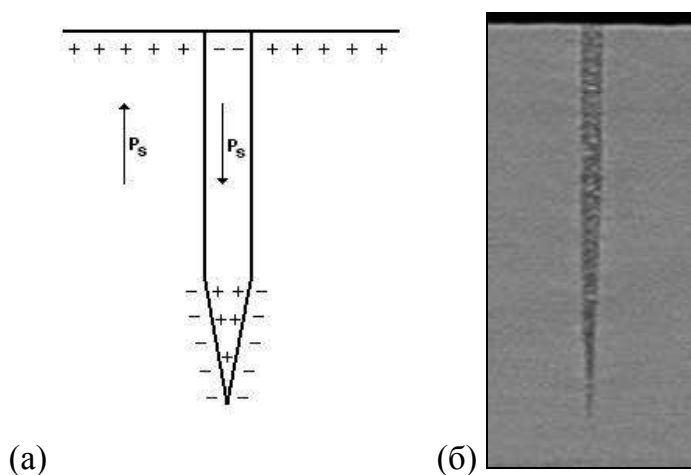


Рисунок 8. Форма доменов, образовавшихся после воздействия интенсивного лазерного излучения: (а) схематичное изображение образовавшегося домена; (б) оптическая визуализация рельефа травления на боковом сечении.

Экспериментально было показано, что длина доменов в полярном направлении сильно зависит от условий облучения. Типичные значения при оптимальных условиях облучения значительно превышают 10 мкм и могут достигать сотен микрон. Полученные нами рекордные значения длины доменов превышают 450 мкм в пластине толщиной 500 мкм (Рис. 9).

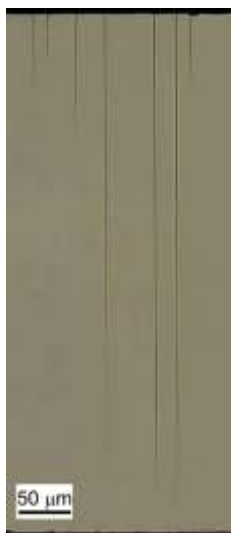


Рисунок 9. Домены глубиной до 450 мкм. Оптическая визуализация рельефа травления на боковом сечении пластины.

Исследования, проведенные с помощью сканирующей зондовой микроскопии, показали, что ширина доменных лучей практически совпадает с шириной аппликаций и отлично воспроизводится (Рис. 10а,б). Проведенный статистический анализ показал, что средняя ширина доменов составляет 1.71 мкм, а дисперсия 0.17 мкм (Рис. 10в).

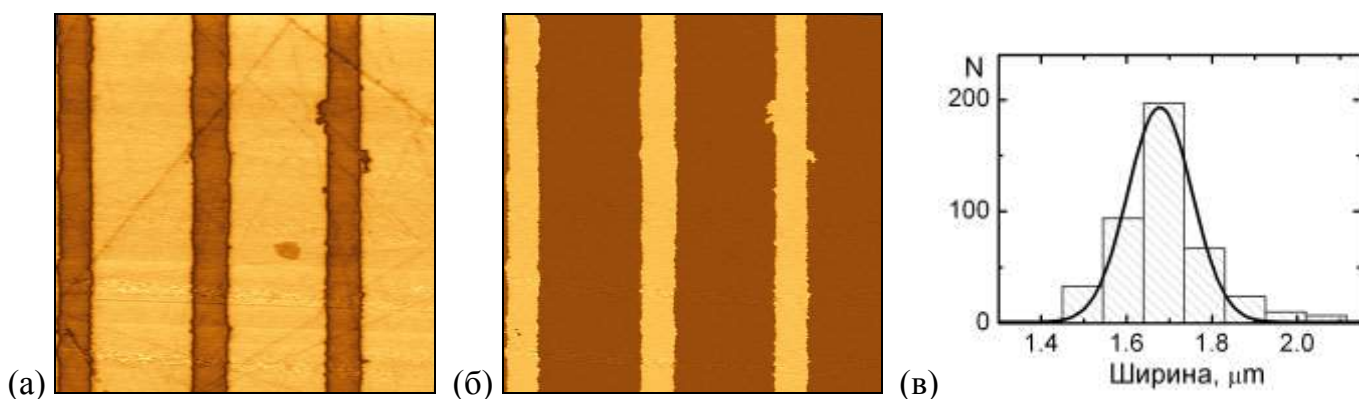


Рисунок 10. Периодическая доменная структура, индуцированная ИК лазерным излучением в пластине с аппликациями. Визуализация с помощью PFM: (а) амплитуда сигнала; (б) фаза сигнала. Размер скана 20х20 мкм. (в) Функция распределения ширины доменов. Аппроксимация проводилась функцией распределения Гаусса.

Изменение условий переключения позволило реализовать рост существенно более узких доменных лучей вдоль одного из краев аппликации (Рис. 11). Среднее значение ширины доменных лучей составило 840 нм, а дисперсия 90 нм. Точность определения ширины доменов составила 100 нм. Важно отметить, что во всех случаях рост доменных лучей, индуцированных интенсивным лазерным излучением, строго ограничивается шириной полос металлических аппликаций (Рис. 11).

Этот эффект блокирования разрастания доменов может быть отнесен за счет особенностей распределения пьезоэлектрических полей на границах металлических полос, которые были получены с помощью компьютерного моделирования. Нами было показано, что, во-первых, максимум пьезоэлектрического поля с внутренней стороны аппликации приводит к образованию доменов под краями металлических аппликаций, а во-вторых, наличие пьезоэлектрического поля обратного знака с внешней стороны аппликации препятствует разрастанию доменных лучей за ее пределы.

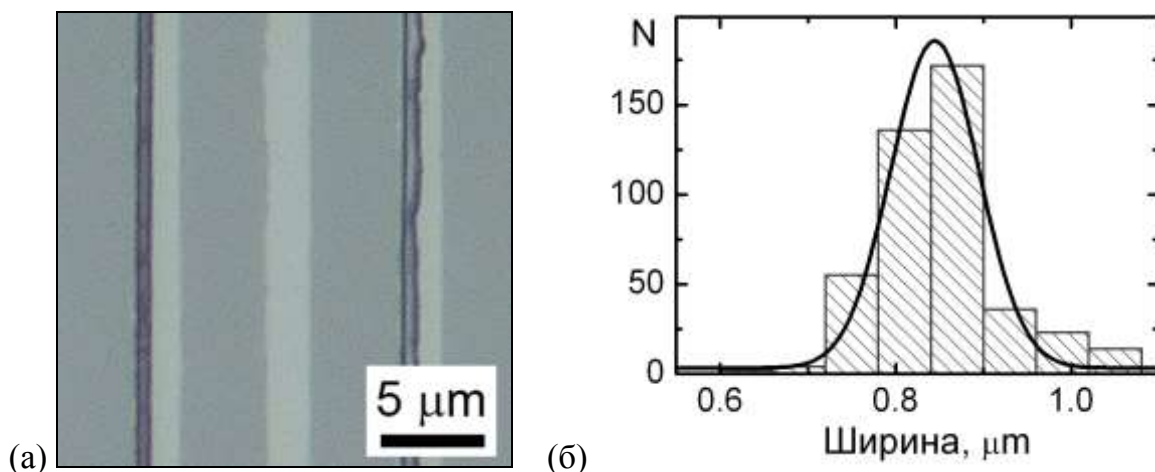


Рисунок 11. (а) Пример образования доменных лучей под краем аппликаций. Светлые полосы – аппликации. Оптическая визуализация рельефа травления; (б) Функция распределения ширины доменных лучей под краем аппликация. Аппроксимация проводилась функцией распределения Гаусса.

Выполнение условий блокирования роста доменов за пределы металлических полос и подбор оптимальных условий облучения позволил создавать прецизионную структуру, период которой совпадает с периодом аппликации.

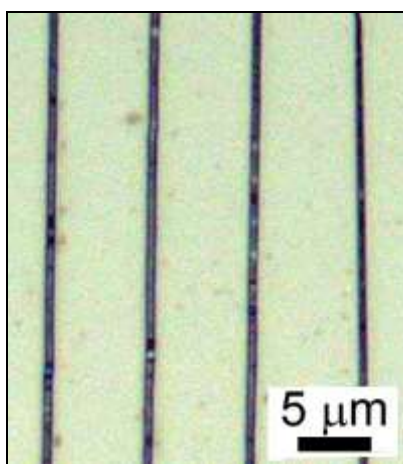


Рисунок 12. Периодическая доменная структура, полученная в результате облучения ИК излучением пластины с аппликациями.

На Рисунке 12 представлена периодическая структура со средним значением периода 6.95 мкм и дисперсией 100 нм, полученная при неоднородном облучении инфракрасным излучением на поверхность пластин ниобата лития. Точность определения периода составила 200 нм.

### **3.1. Результаты экспериментов по исследованию влияния одновременного воздействия лазерного излучения и электрического поля на доменную структуру монокристаллов ниобата лития**

При выполнении поставленной задачи проводилось исследование одновременного воздействия лазерного излучения высокой интенсивности и внешнего электрического поля на формирования доменной структуры в пластинах легированного MgO ниобата лития.

Известно, что повышение температуры монокристаллов MgO:LN приводит к значительному уменьшению величины коэрцитивного поля. Поэтому ожидалось, что облучение пластин MgO:LN с одновременным приложением внешнего электрического поля существенно изменит кинетику формирования доменной структуры.

Анализ оптических изображений с доменной структурой, полученной после одновременного воздействия лазерного излучения и приложения внешнего электрического поля, позволил выявить ряд особенностей формирования доменной структуры.

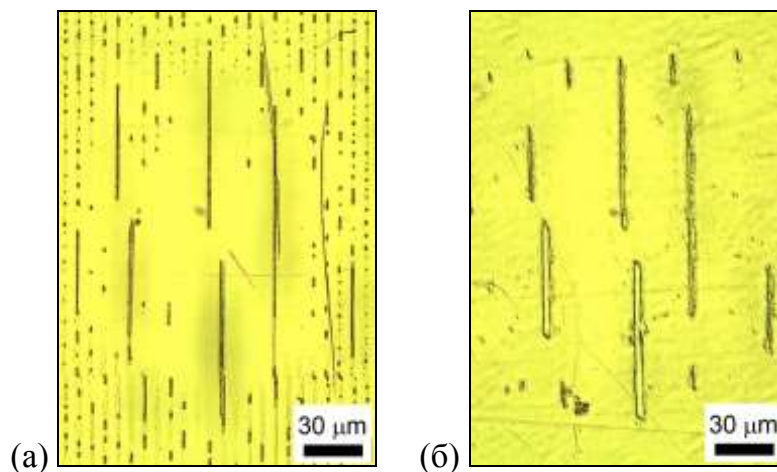


Рисунок 13. Доменные лучи на (а) Z+ и (б) Z- полярной поверхности, полученные в результате одновременного воздействия лазерного излучения и электрического поля.

Приложение постоянного внешнего электрического поля с напряженностью ниже порогового значения позволяет при лазерном облучении формировать домены с глубиной равной толщине облучаемой пластины (сквозные домены). Важно отметить, что при этом ширина доменов на полярных поверхностях не превышает ширины электродов (Рис. 13).

Последний факт играет принципиальную роль для создания периодических доменных структур с субмикронным периодом. Обычно попытки использовать классические методы (только за счет приложения внешнего электрического поля) для создания субмикронных периодических структур не достигают успеха, поскольку домены существенно разрастаются за пределы электродов. Этот же крайне нежелательный эффект не позволяет контролировать ширину создаваемых доменов, что понижает эффективность генерации второй гармоники в устройствах, создаваемых традиционными методами.

Наблюдаемое ограничение роста доменов может быть объяснено за счет особенностей пространственного распределения пьезоэлектрические поля с внешней стороны металлического электрода. Кроме того, следует принять во внимание тот факт, что интенсивное лазерное облучение позволяет очистить поверхность пластины от неконтролируемых загрязнений, играющих роль “паразитного электрода”, и таким образом, препятствует образованию электрического поля за пределами металлических электродов.

### **3.2. Результаты экспериментов по исследованию влияния облучения лазерным излучением с использованием последующего приложения электрического поля на доменную структуру легированного MgO ниобата лития**

При выполнении поставленной задачи проводилось исследование кинетики доменной структуры MgO:LN во внешнем электрическом поле после лазерного облучения.

Было показано, что переключение поляризации во внешнем электрическом поле после лазерного облучения начинается на Z+ полярной поверхности. При этом изолированные домены и доменные лучи, образовавшиеся в результате лазерного облучения, играют роль зародышей, с которых начинается процесс переключения поляризации (Рис. 14а).

Следует отметить, что при этом нам удалось уменьшить эффект уширения доменов по сравнению с традиционным переключением, но не удалось избежать его полностью. Образовавшиеся домены прорастают на всю глубину пластины, и образуется периодическая структура, состоящая из доменов с плоскими стенками (Рис. 14б).

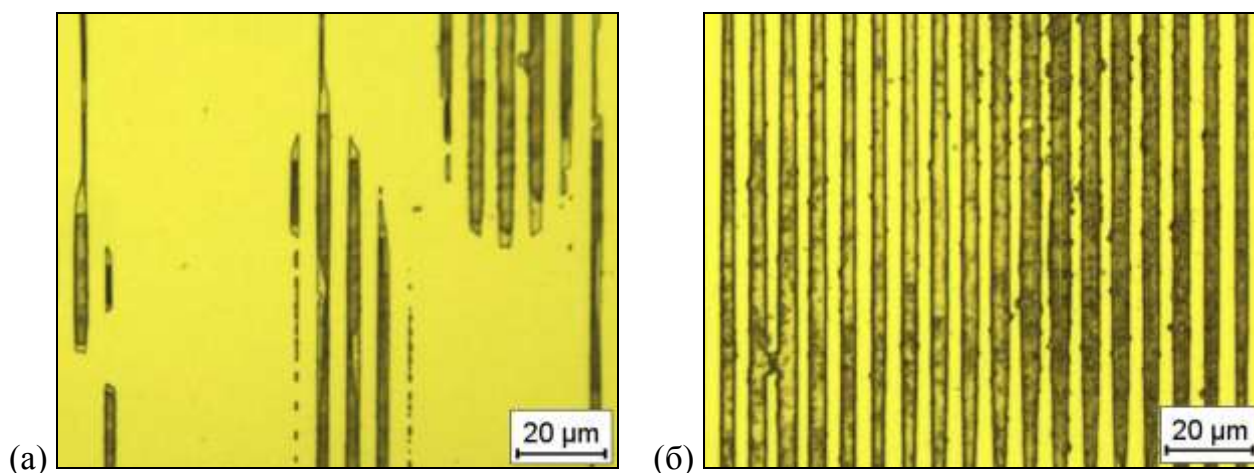


Рисунок 14. (а) Рост доменов при приложении электрического поля с индуцированных лазерным излучением зародышей; (б) периодическая доменная структура, образовавшаяся после приложения электрического поля.

### 3.3. Результаты экспериментов по исследованию влияния локального нагрева пропусканием тока через проводящие аппликации на доменную структуру легированного MgO ниобата лития

В качестве альтернативного способа были проведены предварительные эксперименты по созданию периодических доменных структур с помощью неоднородного нагрева пластины за счет пропускания тока через полосовые поверхностные проводящие аппликации. Примеры полученных структур приведены на Рисунках 15 и 16.



Рисунок 15. Рост доменов в результате локального импульсного нагрева путем пропускания тока через металлические аппликации. Оптическая визуализация доменной структуры, выявленной травлением.

Показано, что используемая методика, основанная на пропускании последовательности импульсов тока через аппликации, позволяет получать полосовые домены и нано-доменные цепи строго под металлическими аппликациями. Используемая

методика представляется чрезвычайно перспективной. Естественно, что в этом случае переключение поляризации вызвано только воздействием пироэлектрического поля.

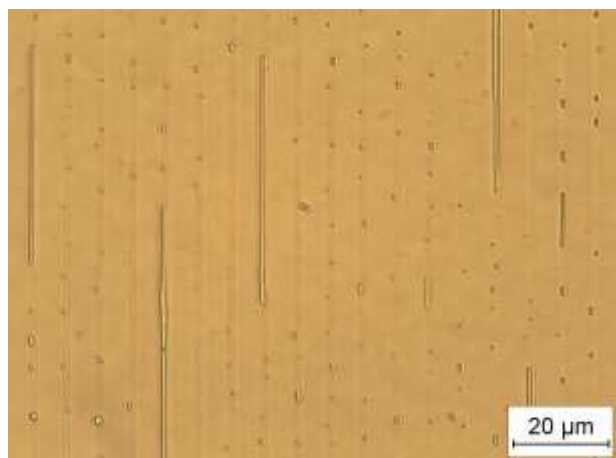


Рисунок 16. Контролируемое формирование полосовых доменов и доменных цепей в результате локального импульсного нагрева путем пропускания тока через металлические аппликации. Оптическая визуализация доменной структуры, выявленной травлением.



#### 4. Сопоставление результатов эксперимента и моделирования

Для объяснения различных экспериментально обнаруженных особенностей роста доменов было проведено компьютерное моделирование кинетики роста доменной структуры при неоднородном изменении температуры, вызванном облучением импульсным лазерным излучением пластины с поверхностными периодическими металлическими аппликациями.

##### 4.1. Влияние металлических аппликаций

Все полученные результаты были получены в предположении, что при облучении ИК излучением нагреваются, преимущественно, области пластины под аппликациями. После прекращения облучения, нагретые области начинают быстро остывать, отдавая тепло холодной части, что приводит к появлению неоднородного пирозлектрического поля, которое является переключающим под аппликациями и подавляет переключение за их границами (Рис. 17а). Полученные особенности распределения поля вблизи края аппликаций, обусловлены более быстрым охлаждением, благодаря непосредственному контакту с холодной частью образца (Рис. 17б).

Полученные особенности распределение пирозлектрического поля позволяют объяснить экспериментально наблюдаемое образование зародышей преимущественно под краями аппликаций, а также полное подавление переключения за границами аппликаций.

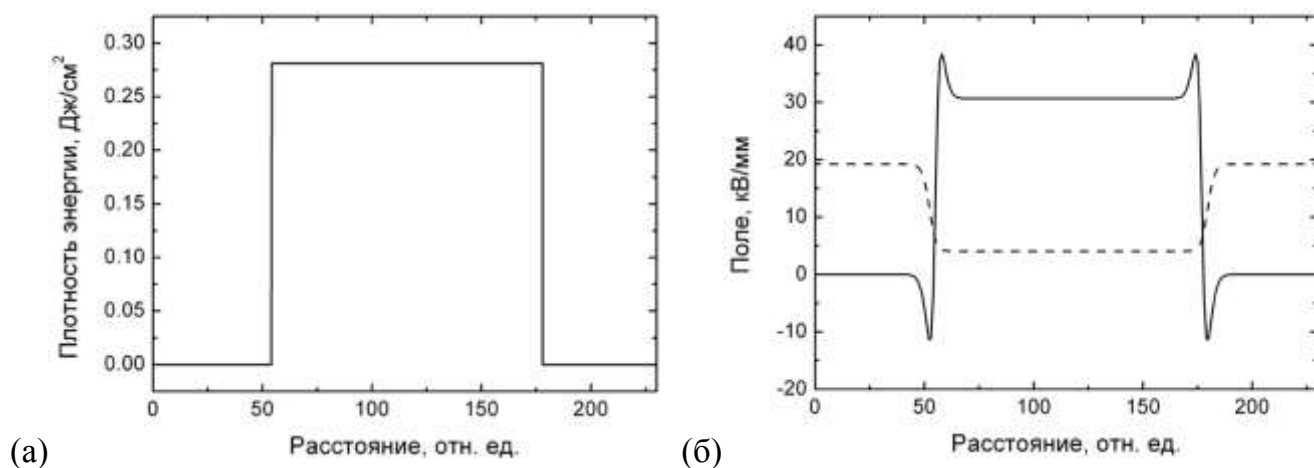


Рисунок 17. Влияние аппликаций. Пространственные распределения: а) плотности энергии в сечении лазерного пучка, б) коэрцитивного поля (пунктирная линия) и переключающего пирозлектрического поля (сплошная линия) через 10 мкс после окончания лазерного импульса.



## 4.2. Влияние неоднородного облучения

Для объяснения наблюдающегося неоднородного переключения под аппликациями (Рис. 18) проводилось компьютерное моделирование кинетики роста доменной структуры при неоднородном изменении температуры, вызванном пространственно неоднородным облучением. Предполагалось гауссово распределение плотности энергии излучения, что качественно согласуется с экспериментальными данными (Рис. 18а).

Видно, что расчетное пространственное распределение переключающего поля (Рис. 18б) качественно согласуется с результатами экспериментального измерения зависимости доли переключенных под аппликациями доменов от расстояния до центра облученной зоны (Рис. 18в).

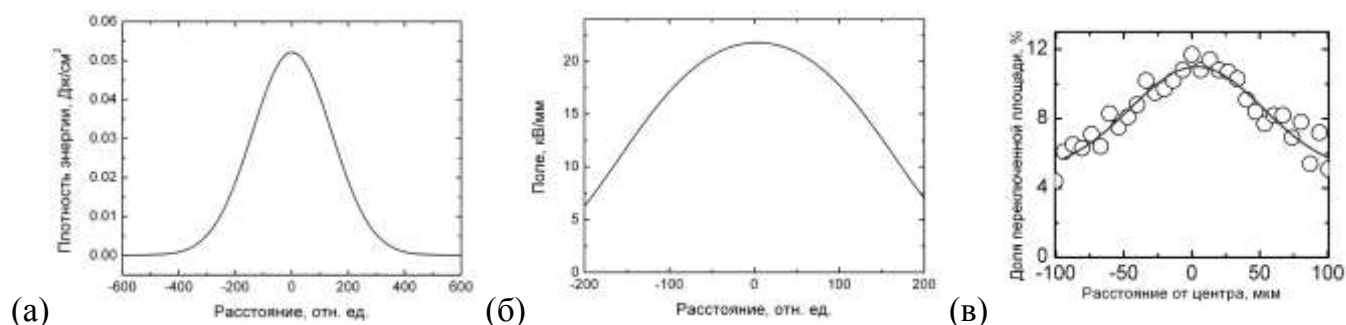


Рисунок 18. Неоднородное облучение. Зависимости от расстояния до центра облученной зоны: (а) плотности энергии лазерного пучка; (б) переключающего пироэлектрического поля, полученного моделированием; и (в) измеренной доли переключенных под аппликациями доменов.

## 4.3. Облучение сериями импульсов лазерного излучения

Для выявления особенностей воздействия серий лазерных импульсов моделировалось распределение поля для восьми последовательных импульсов длительностью по 50 мкс с интервалами 500 мкс. Распределения пироэлектрических полей через 10 мкс после окончания первого импульса (пунктир), и после окончания восьмого (сплошная кривая) представлены на Рис. 19. После первого импульса охлаждение в объеме по всей площади происходит быстрее, в результате чего поле под аппликацией достигает больших значений. При воздействии восьмого импульса объем пластины существенно нагрет и заметное переключающее поле существует только под краями аппликации, что приводит к переключению только под краями аппликаций. Результаты моделирования совпадают с экспериментом и позволяют объяснить экспериментально наблюдаемое при многократном облучении увеличение плотности нано-доменных цепей под краями аппликаций, и

отсутствие существенного изменения доменной структуры под центральной частью аппликаций.

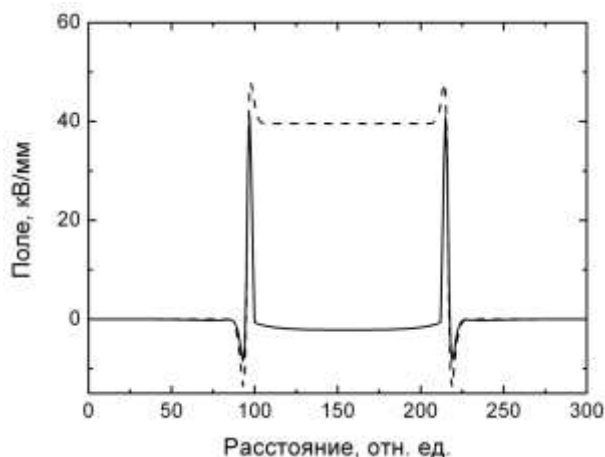


Рисунок 19. Пространственные распределения переключющих пирополей через 10 мкс после первого (пунктир) и после восьмого (сплошная кривая) последовательных импульсов лазерного излучения.

#### 4.4. Рост нано-доменных цепей

Для обоснования основных механизмов разрастания доменных цепей: (1) роста вдоль выделенного направления, (2) отражения и (3) ветвления была предложена следующая модель для изучения взаимодействия растущих нано-доменных цепей, основанная на экспериментальных данных.

Как уже отмечалось, анализ изображений поперечных сечений показал, что растущие нано-домены имеют необычную форму, напоминающую карандаш с незаряженными вертикальными стенками и заостренным концом с заряженными стенками (Рис. 20). Такая форма позволила при моделировании упростить задачу и рассматривать каждый изолированный нано-домен как точечный заряд, расположенный на глубине  $L$  (Рис. 20) и создающий подавляющее переключение электростатическое поле.

Предполагалось, что при росте цепи нано-доменов каждый вновь образующийся нано-домен появлялся в точке с наименьшим значением суммарного подавляющего поля, создаваемого всеми нано-доменами, на расстоянии равном расстоянию коррелированного зародышеобразования  $r_{\text{нuc}}$  от последнего зародившегося нано-домена. Кроме того, для учета эффекта анизотропии величина подавляющего поля, уменьшалась в трех эквивалентных  $Y$  направлениях, что соответствует симметрии кристалла ( $C_{3v}$ ).

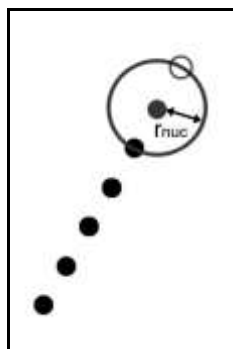


Рисунок 20. Схема роста нано-доменной цепи.

Особое внимание было уделено изучению взаимодействия нано-доменных цепей при отражении и ветвлении. В результате моделирования удалось показать, что форма цепей нано-доменов определяется двумя параметрами: глубиной нано-доменов  $L$ , и величиной эффекта анизотропии  $A$  (Рис. 21).

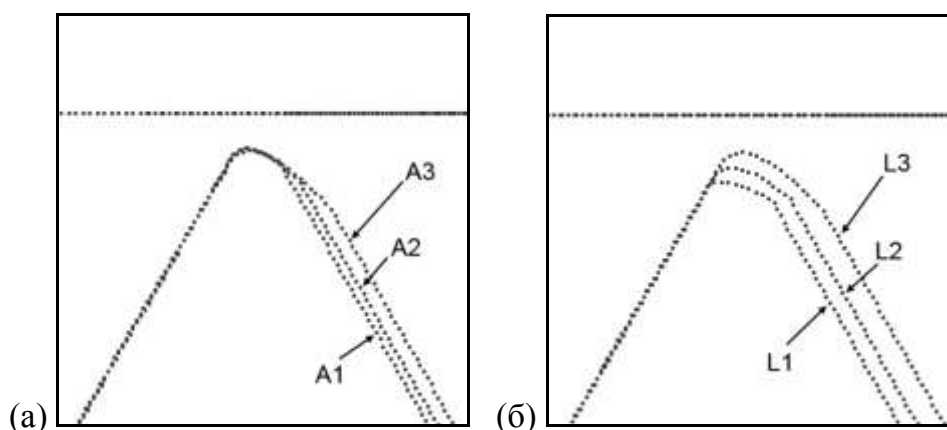


Рисунок 21. Траектории отражения, полученные моделированием при изменении: (а) величины анизотропии ( $A1 > A2 > A3$ ), и (б) глубины нано-доменов ( $L1 > L2 > L3$ ).

Подбор указанных параметров позволил получить прекрасное соответствие между результатами моделирования и экспериментально наблюдаемыми траекториями (сравни Рис. 22 и Рис. 23). Экспериментально показано, что при облучении УФ излучением проявляется сильная анизотропия роста нано-доменных цепей и глубина нано-доменов составляет около трех микрон. При использовании ИК излучения анизотропия значительно меньше, а глубина прорастания доменов достигает сотен микрон. Важно отметить, что моделируемые и экспериментальные траектории для УФ и ИК излучения при отражении (Рис. 22, 23) практически совпали при таких же соотношениях указанных параметров.

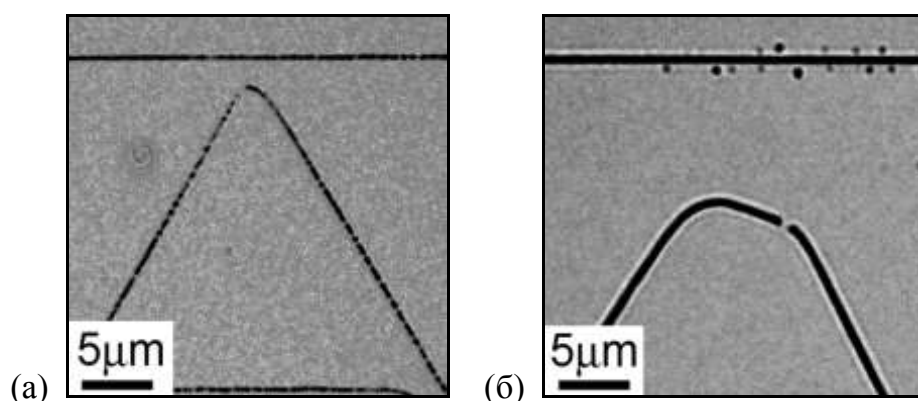


Рисунок 22. Типичные экспериментальные траектории отражения nano-доменного луча при облучении (а) УФ и (б) ИК лазерным излучением.

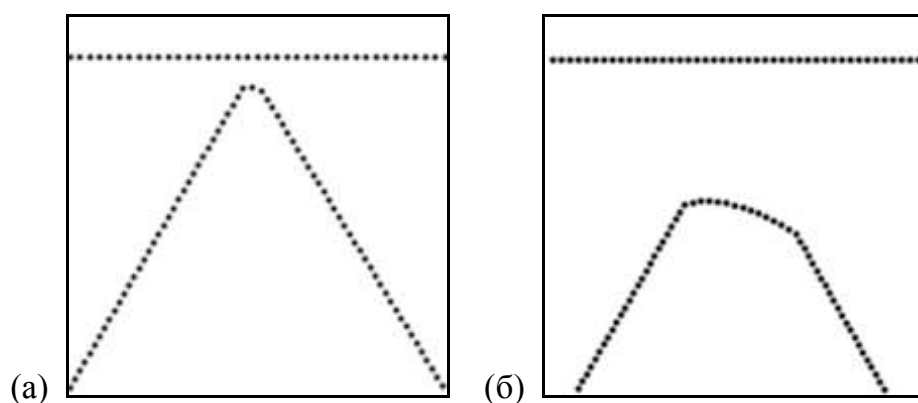


Рисунок 23. Результаты моделирования траекторий отражения nano-доменного луча путем подгонки величины анизотропии и глубины доменов.

В рамках рассмотренной модели удалось также объяснить образование в результате ветвления новых цепей nano-доменов, ориентированных строго в X направлении (Рис. 24).

Очевидно, что вновь образовавшаяся “доменная ветвь” находится в близости от существующей цепи в создаваемом ей сильным подавляющем переключение поле. При этом рост nano-доменной цепи происходит в X-направлении, перпендикулярном ориентации существующей цепи. При удалении от существующей цепи уменьшается ее влияние, и направление роста определяется анизотропией. Следовательно, длина X участка уменьшается при увеличении анизотропии. Полученная расчетная анизотропия роста nano-доменных лучей экспериментально наблюдается при переключении в результате ИК облучения (Рис. 24а).

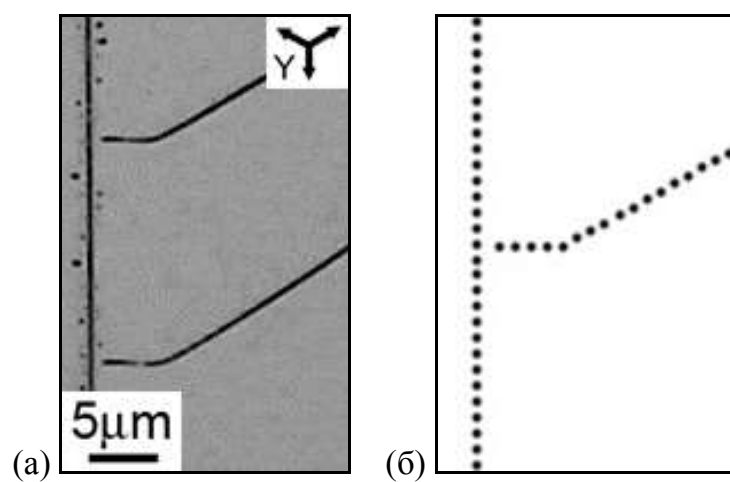


Рисунок 24. (а) Экспериментальное наблюдение и (б) моделирование возникновения X-ориентированных участков при ветвлении.

## **5. Изготовление экспериментальных образцов**

## **6. Описание возможности создания конкурентоспособной технологии и разработка рекомендаций по использованию результатов НИР**

Полученные результаты по созданию нано-доменных структур с помощью воздействия импульсного лазерного излучения в присутствии металлических аппликаций или импульсного резистивного нагрева проводящих электродов на поверхности образца открывают возможности для **разработки технологии создания интегральных нелинейно-оптических устройств на основе прецизионных периодических полосовых нано-доменных структур с субмикронным периодом, применяемых в волноводной оптике**. Предлагаемая технология является конкурентоспособной, так как до сих пор в мире не существует технологий создания таких устройств в промышленных масштабах. Методика импульсного лазерного воздействия на поверхность вещества с применением сканирования по большой площади образца является хорошо отработанной и находит широкое применение в промышленности. Импульсный нагрев поверхностной структуры с помощью проводящих периодических аппликаций за счет пропускания через них электрического тока также является технологичной, контролируемой и легко автоматизируемой операцией. Важно отметить, что в нашей методике период доменной структуры и ширина доменов однозначно определяется параметрами структуры аппликаций, наносимой литографическими методами, что позволяет достичь прецизионной точности и воспроизводимости периода получаемых нано-доменных периодических структур и ширины доменов.

Возможна разработка **улучшенной технологии создания нелинейно-оптических элементов для генерации второй гармоники в диапазоне 400-600 нм на основе регулярных объемных доменных структур с периодом 3-7 мкм**, создаваемых с помощью одновременного или последовательного использования двух типов воздействий:

- 1) импульсного нагрева с помощью лазерного излучения или пропускания тока через проводящие аппликации;
- 2) приложения импульсов электрического поля к полосовым электродам.

Воздействие импульсного нагрева позволит создавать приповерхностные домены под периодическими электродами, а приложение импульсов электрического поля позволит обеспечить прораствание доменов сквозь толщину пластины.

Такая технология будет обладать следующими преимуществами по сравнению с известными:

- Ограничение роста доменов за пределы электрода обеспечит возможность контроля ширины создаваемых доменов по отношению к периоду (скважность) доменной структуры, что приведет к увеличению:
  - ✓ порога оптического повреждения за счет подавления фоторефрактивного эффекта при создании структуры со скважностью равной 0.5, что важно для создания мощных источников излучения;
  - ✓ рабочей апертуры по толщине пластины и эффективности преобразования за счет существенного увеличения соотношения глубины к ширине доменов.
- Контроль мест образования доменов позволит:
  - ✓ повысить однородность за счет одновременного прорастания доменов на всей площади пластины;
  - ✓ снизить стоимость элементов за счет уменьшения влияния неизбежной неоднородности исходных пластин и увеличения выхода годных элементов;
  - ✓ повысить эффективность преобразования за счет существенного улучшения однородности доменной структуры;

Таким образом, результаты НИР могут быть использованы для выполнения проблемно-ориентированных целевых исследований, направленных на разработку технологических основ создания:

- 1) интегральных нелинейно-оптических устройств на основе прецизионных периодических полосовых нано-доменных с субмикронным периодом, применяемых в волноводной оптике;
- 2) нелинейно-оптических элементов для генерации второй гармоники в диапазоне 400-600 нм на основе регулярных объемных доменных структур с периодом 3-8 мкм.



## 7. Технические требования для ТЗ на НИОКР

Цели работы:

- создание основ технологии изготовления с использованием неоднородного импульсного нагрева нано-доменных структур с субмикронными периодами для управления нелинейно-оптическими свойствами и создания оптических элементов для преобразования частоты и коммутации когерентного излучения;

- разработка улучшенных методов создания преобразователей длины волны излучения на основе монокристаллов ниобата лития с прецизионной регулярной полосовой доменной структурой с периодами от 3 до 8 мкм с использованием неоднородного импульсного нагрева.

В процессе выполнения проекта должны быть выполнены следующие работы:

1. Установлены экспериментальные закономерности образования и роста доменных структур в монокристаллах ниобата лития при наличии периодических электродов с использованием как последовательного, так и одновременного (в том числе многократного) применения следующих воздействий:

- импульсного нагрева с помощью лазерного излучения или пропускания тока через проводящие аппликации;
- приложения импульсов электрического поля к полосовым электродам.

2. Построена математическая модель и проведено компьютерное моделирование процесса зарождения и роста доменов вдоль электродов и в глубину с учетом одновременного или последовательного, однократного или многократного воздействия пироэлектрического поля и импульсов внешнего электрического поля. При построении модели будут учтены:

- эволюция распределения температурного поля в трехмерном пространстве при импульсном нагреве и последующем охлаждении;
- образование и эволюция пространственно неоднородного пироэлектрического поля;
- особенности режимов нагрева и охлаждения в случае использования лазерного облучения и пропускания тока через проводящие аппликации;
- температурная зависимость параметров объемного экранирования и кинетики доменной структуры.

3. Проведение сравнительного анализа результатов компьютерного моделирования и экспериментальных исследований должно позволить сформулировать пути оптимизации методики создания объемных регулярных полосовых доменных структур с периодами 3-8 мкм.
4. Должны быть созданы экспериментальные образцы нелинейно-оптических элементов на основе регулярных полосовых доменных структур для генерации второй гармоники в режиме квазифазового синхронизма первого порядка для длин волн второй гармоники 532 нм и 473 нм.
5. Должно быть проведено оптическое тестирование однородности и эффективности преобразования полученных экспериментальных образцов.

Создаваемые прецизионные регулярные полосовые доменные структуры должны характеризоваться следующими основными параметрами:

- средним значением и дисперсией периода структуры;
- отношением ширины создаваемых доменов к периоду (скважность).

Данные параметры должны быть определены с использованием статистической обработки изображений доменной структуры, выявленных на полярных срезах и поперечных сечениях. Изображения доменной структуры должны быть получены с помощью оптической и сканирующей зондовой микроскопии.

По окончании работ должны быть представлены: (1) экспериментальные образцы с нано-доменной структурой, (2) экспериментальные оптические элементы с различными периодами.

1) Экспериментальные образцы с нано-доменной структурой должны быть представлены в количестве четырех штук. Они должны представлять собой пластины ниобата лития с периодической доменной структурой площадью не менее одного квадратного миллиметра. Образцы должны сопровождаться: (1) изображениями доменной структуры на полярном срезе и боковых сечениях, полученными методами оптической и сканирующей зондовой микроскопии, (2) параметрами структуры, полученными статистической обработкой изображений, (3) основными условиями создания доменной структуры.

2) Экспериментальные образцы нелинейно-оптических элементов для генерации второй гармоники с длиной волны 532 нм и 473 нм должны быть представлены в количестве четырех штук для каждой из длин волн. Они должны быть выполнены из

пластин ниобата лития, легированных 5% MgO, с прецизионной доменной структурой с периодом 6.95 мкм и 5.2 мкм. Элементы должны иметь тщательно полированные торцы и следующие размеры: длина 4-5 мм, ширина 1.5-3 мм и толщина 1 мм. К каждому из элементов должны быть приложены: (1) изображения доменной структуры, полученные оптической и сканирующей зондовой микроскопией, (2) параметры структуры, полученные статистической обработкой изображений, (3) результаты измерения пространственного распределения и температурной зависимости эффективности генерации второй гармоники.

При выполнении работ должны выполняться требования техники безопасности при работе с лазерной техникой в соответствии с ГОСТ 12.1.040-83.

## **Заключение**

### **При выполнении контракта были выполнены следующие основные работы:**

- проведен анализ научных публикаций и патентный поиск по теме проекта;
- разработаны и апробированы три варианта экспериментальных методик с использованием облучения ИК и УФ импульсным интенсивным лазерным излучением для создания периодических доменных структур в пластинах конгруэнтного LN и MgO:LN: (1) без приложения электрического поля, (2) с приложением поля в процессе облучения, (3) с приложением поля после облучения;
- экспериментально и методами компьютерного моделирования исследовано формирование нано-доменных структур в пирозлектрическом поле, возникающем в результате воздействия импульсного лазерного излучения;
- разработана и апробирована методика определения параметров периодической доменной структуры;
- экспериментально исследованы зависимости параметров периодической доменной структуры от условий облучения;
- сопоставлены результаты компьютерного моделирования и эксперимента;
- изготовлены экспериментальные образцы с периодической доменной структурой;
- проведена оценка возможности создания конкурентоспособной технологии и разработаны рекомендации по использованию результатов НИР.

### **Получены следующие основные результаты:**

1. Впервые на примере монокристаллов LN обнаружена и исследована кинетика одномерного роста сегнетоэлектрических доменов при переключении в сильно неравновесных условиях, созданных импульсным ИК и УФ лазерным излучением, которое проявляется в ориентированном распространении нано-доменных “лучей” и нано-доменных цепей с диаметром изолированных доменов от 50 до 300 нм
2. Впервые выявлены законы роста и взаимодействия нано-доменных лучей, ориентированных вдоль выделенных кристаллографических направлений, которые приводят к формированию самоподобных поверхностных структур.
3. Впервые обнаружен эффект образования нано-доменных цепей и полосовых нано-доменов вдоль границ металлических аппликаций в результате облучения монокристаллов MgO:LN серией импульсов ИК лазерного излучения, что позволило без приложения внешнего электрического поля создавать строго периодические нано-доменные структуры.

4. Впервые экспериментально установлено, что легирование MgO значительно увеличивает анизотропию роста нано-доменных лучей в LN при облучении УФ лазерным излучением.

5. Впервые продемонстрирован управляемый рост нано-доменных лучей при сканировании лазерным излучением в Y направлении.

6. Впервые методами компьютерного моделирования выявлены особенности пространственного распределения пирозлектрического поля, образующегося после окончания лазерного импульса при охлаждении нагретой лазерным излучением зоны, что позволило объяснить экспериментально обнаруженные закономерности формирования нано-доменных структур.

7. Впервые методами компьютерного моделирования изучены процессы роста цепей нано-доменов и их взаимодействия. Выявлена роль эффекта коррелированного зародышеобразования при формировании нано-доменных структур.

8. Впервые показана возможность создания стабильных полосовых доменных структур в ниобате лития с шириной доменных лучей  $320 \pm 60$  нм и глубиной доменов более 400 мкм при неоднородном облучении интенсивным лазерным излучением без приложения внешнего электрического поля.

9. Впервые обнаружен и объяснен эффект блокирования роста доменов за пределы электродов, обусловленный неоднородным нагревом при облучении пластины с поверхностными аппликациями.

10. Предложена оригинальная модель для объяснения кинетики доменной структуры в результате воздействия пространственно неоднородного нагрева сегнетоэлектрической пластины, подтвержденная совпадением результатов расчета с экспериментом.

11. Впервые продемонстрирована возможность создания полосовых доменных структур за счет локального импульсного нагрева пропусканием тока через проводящие аппликации.

12. Изготовлены экспериментальные образцы, представляющие собой пластины ниобата лития с периодической доменной структурой. Паспорта четырех экспериментальных образцов, содержащие (1) изображения доменной структуры, полученные методами оптической и сканирующей зондовой микроскопии, (2) параметры структуры, полученные статистической обработкой изображений, и (3) условия создания доменной структуры, представлены в Приложении А.

Важным достижением является тот факт, что достоверность предложенной модели для объяснения механизма переключения при воздействии локального нагрева подтверждена совпадением результатов расчета с экспериментом. Очевидно, что наличие достоверной модели позволит широко использовать методы компьютерного моделирования, и существенно облегчит разработку технологии создания эффективных преобразователей частоты излучения на основе периодически поляризованного ниобата лития.

Полученные результаты патентоспособны и представляют существенный интерес для развития нано-доменной инженерии и создания периодических субмикронных и нано-доменных структур в ниобате лития.

### **Оценка технико-экономической эффективности внедрения результатов.**

Полученные результаты позволяют сформулировать новое направление в доменной инженерии, связанное с переключением поляризации в сильно неравновесных условиях, создаваемых в результате пространственно неоднородного импульсного нагрева сегнетоэлектриков. Впервые показано, что в этом случае удастся формировать стабильные нано-доменные структуры, состоящие из полосовых доменов шириной 200 - 300 нм и рекордной глубиной, достигающей сотен микрон. Такие доменные структуры позволят реализовать качественно новые возможности применения сегнетоэлектриков в фотонике и, что важно, могут быть использованы не только для волноводных, но и для объемных устройств.

Разработанная методика обладает рядом очевидных преимуществ по сравнению с известными методами. В настоящее время во всем мире ведутся попытки создания периодических доменных структур с субмикронными периодами. Для этой цели используют сканирование поверхности фокусированным лучом света или приложение электрического поля с помощью проводящего зонда сканирующего зондового микроскопа. Очевидно, что эти методики не пригодны для промышленного использования, поскольку процесс создания доменной структуры сканированием чрезвычайно долг и в принципе не позволяет обеспечить необходимой для нелинейно-оптических устройств однородности периода прецизионной доменной структуры с допустимым отклонением не более 20 нм. По этой же причине для указанных применений не могут быть использованы и любые самоорганизованные нано-доменные структуры. Таким образом, разработанная методика является уникальной и исключительно перспективной для широкого круга применений.

Экспериментально продемонстрированное переключение при локальном нагреве с помощью тока, пропускаемого через систему электродов, является оригинальным решением и позволяет значительно упростить и удешевить процесс изготовления периодических структур. Реализация технологии с использованием этого технического решения открывает путь к массовому производству устройств на основе периодически поляризованного ниобата лития с прецизионной микро- и нано-доменной структурой.

Принципиальную роль для доменной инженерии играет полученный эффект блокировки разрастания доменов за пределы электродов. Этот принципиальный результат открывает ранее никем не реализованные возможности для прецизионного контроля не только периода, но и соотношения ширин доменов разного знака (скважность). В этом случае можно существенно повысить эффективность оптических преобразователей. Кроме того, получена новая форма несквозных доменов с постоянной шириной и в основном нейтральными доменными стенками, что исключительно важно для объемных преобразователей.

Внедрение предложенной методики создания периодических доменных структур позволит улучшить параметры устройств для преобразования длины волны излучения при одновременном существенном уменьшении их стоимости. Полученный конкурентоспособный продукт может быть широко внедрен на нескольких сегментах Российского и мирового рынков: (1) биомедицинские инструменты, (2) цифровое изображение и копирование, (3) хранение информации, (4) контроль полупроводниковых приборов, (5) проекционное телевидение.

На основании полученных результатов с учетом проведенной оценки возможности создания конкурентоспособной технологии разработаны технические требования для ТЗ на НИОКР.

К выполнению НИР были привлечены: 8 студентов, 3 аспиранта, 8 молодых ученых, из них 5 кандидатов физ.-мат. наук.

По результатам работы защищены: диплом специалиста, две выпускные работы на степень бакалавра и курсовая работа.

Результаты используются при подготовке к защите диссертации на соискание степени кандидата физ.-мат. наук (А.И. Лобов), а также двух выпускных работ на степень бакалавра и курсовой работы.

Результаты изучения формирования нано-доменных структур были использованы в курсе «Физика наноматериалов»; методики визуализации доменной структуры с помощью СЗМ – в физическом практикуме и в курсах: «Фракталы в физике», «Физика сегнетоэлектриков», «Кинетика фазовых превращений» и «Физика открытых систем» для студентов физического факультета УрГУ.

Основное научное содержание НИР отражено в 19 публикациях: опубликована глава в коллективной монографии и статья, приняты в печать глава в коллективной монографии и 5 статей, представлено на международных и всероссийских конференциях 11 докладов.

#### **Монографии:**

1. V.Ya. Shur, Kinetics of Ferroelectric Domains: Application of General Approach to  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$ , in “Frontiers of Ferroelectricity”, A Special issue of the Journal of Materials Science, Ed. by S.B. Lang, H.L.W. Chan, Springer, 2007, pp.199-210.
2. V.Ya. Shur, Nano- and Micro-domain Engineering in Normal and Relaxor Ferroelectrics, in “Advanced Dielectric, Piezoelectric and Ferroelectric Materials - Synthesis, Characterization & Applications”, ed. by Z.G. Ye, Woodhead Publishing Ltd, 2007 (in press).

#### **Статьи:**

3. V.Ya. Shur, E.L. Rumyantsev, A.G. Shur, A.I. Lobov, D.K. Kuznetsov, E.I. Shishkin, E.V. Nikolaeva, M.A. Dolbilov, P.S. Zelenovskiy, K. Gallo, and M.P. De Micheli, Nanoscale Domain Effects in Ferroelectrics. Formation and Evolution of Self-assembled Structures in  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$ , *Ferroelectrics*, 2007, V.354, pp.145-157.
4. В.Я. Шур, Д.К. Кузнецов, А.И. Лобов, Д.В. Пелегов, Е.В. Пелегова, В.В. Осипов, М.Г. Иванов, А.Н. Орлов, Поверхностные самоподобные нано-доменные структуры, индуцированные лазерным облучением в ниобате лития, ФТТ (представлена к опубликованию).
5. В.Я. Шур, Д.К. Кузнецов, А.И. Лобов, Е.И. Шишкин, П.С. Зеленовский, В.В. Осипов, М.Г. Иванов, А.Н. Орлов, В.В. Платонов, Формирование нано-доменных структур в результате импульсного лазерного облучения ниобата лития, Известия РАН серия физическая, 2007 (в печати).
6. V.Ya. Shur, Domain Nanotechnology in Ferroelectrics: Nano-domain Engineering in Lithium Niobate Crystals, *Ferroelectrics*, 2007 (in press).
7. D.K. Kuznetsov, V.Ya. Shur, S.A. Negashev, A.I. Lobov, D.V. Pelegov, E.I. Shishkin, P.S. Zelenovskiy, V.V. Platonov, M.G. Ivanov, and V.V. Osipov, Formation of Nano-scale



Domain Structures in Lithium Niobate Using High-Intensity Laser Irradiation, *Ferroelectrics*, 2007 (in press).

8. A.I. Lobov, V.Ya. Shur, D.K. Kuznetsov, S.A. Negashev, D.V. Pelegov, E.I. Shishkin, and P.S. Zelenovskiy, Discrete Switching by Nano-scale Domain Ray Growth under Highly-nonequilibrium Conditions in Lithium Niobate Single Crystals, *Ferroelectrics*, 2007 (in press).

**Доклады:**

1. V.Ya. Shur, Nano-domains in Ferroelectrics: Predetermined Nucleation and Discrete Switching in Lithium Niobate and Lithium Tantalate, XI<sup>th</sup> Research Workshop Nucleation Theory and Applications, Dubna, Russia, April 14-22, 2007.
2. V.Ya. Shur, D.K. Kuznetsov, A.I. Lobov, P.S. Zelenovsky, E.I. Shishkin, V.V. Osipov, M.G. Ivanov, and A.N. Orlov, Formation of Self-similar Nano-domain Structures in Lithium Niobate by Laser Irradiation, 19th International Symposium on Integrated Ferroelectrics, Bordeaux, France, ISIF 2007, May 8-12, 2007, p.11B-307-C.
3. V.Ya. Shur, D.K. Kuznetsov, A.I. Lobov, P.S. Zelenovsky, E.I. Shishkin, V.V. Platonov, M.G. Ivanov, A.N. Orlov, and V.V. Osipov, Nanoscale Domain Engineering in Lithium Niobate Crystals by Pulse Laser Illumination, International Conference "Fundamentals of Laser assisted Micro- and Nanotechnologies" St.Petersburg, Russia, FLAMN-07, June 25-28, 2007, p.26.
4. V.Ya. Shur, Domain Nanotechnology in Ferroelectrics: Nano-domain Engineering in Lithium Niobate Crystals, Abstract book of 2nd International Symposium "Micro- and Nano-scale Domain Structuring in Ferroelectrics", Ekaterinburg, Russia, August 22-27, 2007, pp.20-21 (invited).
5. D.K. Kuznetsov, V.Ya. Shur, S.A. Negashev, A.I. Lobov, D.V. Pelegov, E.I. Shishkin, P.S. Zelenovskiy, V.V. Platonov, M.G. Ivanov, and V.V. Osipov, Formation of Nano-scale Domain Structures in Lithium Niobate Using High-Intensity Laser Irradiation, pp.96-97.
6. A.I. Lobov, V.Ya. Shur, D.K. Kuznetsov, S.A. Negashev, D.V. Pelegov, E.I. Shishkin, and P.S. Zelenovskiy, Discrete Switching by Nano-scale Domain Ray Growth under Highly-nonequilibrium Conditions in Lithium Niobate Single Crystals, Abstract book of 2nd International Symposium "Micro- and Nano-scale Domain Structuring in Ferroelectrics", Ekaterinburg, Russia, August 22-27, 2007, pp.74-75.
7. P.S. Zelenovskiy, V.Ya. Shur, D.K. Kuznetsov, S.A. Negashev, A.I. Lobov, E.I. Shishkin, V.V. Platonov, M.G. Ivanov, and V.V. Osipov, Nanoscale Domain Structures Induced by

- Pulse Laser Heating in Congruent and MgO-doped Lithium Niobate, Abstract book of 2nd International Symposium "Micro- and Nano-scale Domain Structuring in Ferroelectrics", Ekaterinburg, Russia, August 22-27, 2007, pp.114-115.
8. V.Ya. Shur, D.V. Pelegov, D.K. Kuznetsov, A.I. Lobov, P.S. Zelenovskiy, E.I. Shishkin, V.V. Platonov, M.G. Ivanov, A.N. Orlov, and V.V. Osipov, Nanoscale Domain Structures in Lithium Niobate Crystals Induced by Pulse Laser Illumination, 11th European Meeting on Ferroelectricity, Bled, Slovenia, EMF-2007, Sept. 3-7, 2007, p.194 (invited).
  9. В.Я. Шур, Формирование самоорганизованных доменных структур в сегнетоэлектриках. Основы нано-доменной инженерии. 6 Всероссийская конференция-школа "Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении (индустрия наносистем и материалы)", Воронеж, 14-20 октября 2007, с.251-253 (приглашенный доклад).
  10. П.С. Зеленовский, В.Я. Шур, Д.К. Кузнецов, С.А. Негашев, А.И. Лобов, Е.И. Шишкин, В.В. Платонов, М.Г. Иванов, В.В. Осипов, Формирование самоорганизованных нано-доменных структур в ниобате лития в результате импульсного лазерного нагрева, Тезисы 6 Всероссийской конференции-школы "Нелинейные процессы и проблемы самоорганизации в современном материаловедении (индустрия наносистем и материалы)", Воронеж, 14-20 октября 2007, с.86-87.
  11. V.Ya. Shur, Domain Nanotechnology in Ferroelectrics: Creation of the Nano-scale Domain Structures in Lithium Niobate, 3rd France-Russia seminar "New Achievements in Materials and Environmental Sciences", Metz, France, November 7-9, 2007 (invited).